

Development of smart biomaterials with tunable properties activated by local environmental changes

著者	Prapatsorn Techawanitchai
内容記述	Thesis (Ph. D. in Engineering)--University of Tsukuba, (A), no. 6044, 2012.3.23 Includes bibliographical references
発行年	2012
URL	http://hdl.handle.net/2241/116950

氏 名 (本籍)	プラパトン テチャワニットチャイ (タ イ)
学 位 の 種 類	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 6044 号
学位授与年月日	平成 24 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審 査 研 究 科	数理物質科学研究科
学 位 論 文 題 目	Development of smart biomaterials with tunable properties activated by local environmental changes (局所環境変化で駆動可能なスマートバイオマテリアルの開発)

主	査	筑波大学教授	博士 (工学)	青 柳 隆 夫
副	査	筑波大学准教授	博士 (農学)	辻 村 清 也
副	査	筑波大学准教授	博士 (工学)	陳 国 平
副	査	筑波大学准教授	博士 (工学)	田 口 哲 志

論 文 の 内 容 の 要 旨

Chapter 1 describes general introduction with short reviews regarded from the basic concept to the current progress of stimuli-responsive materials. The outlines as well as the objectives of this thesis are also provided.

In **chapter 2**, a light responsive hydrogel system composed of P(NIPAAm-co-CIPAAm) and NBA has been prepared with local light controlled shrinking and drug release. The NBA integrated P(NIPAAm-co-CIPAAm) hydrogels demonstrated rapid and uniform shrinking upon UV irradiation due to proton generation from NBA. Local control of pH change was also shown by irradiating UV light on a limited region of the gel through a mask. The NBA-integrated gel was also successfully employed for the controlled release of entrapped dextran, where dextran was successfully released into water in a controlled manner under 365 nm UV illuminations. This system also shows significant promise as a smart platform for triggered and programmed delivery of drugs.

In **chapter 3**, self-bending of NBA integrated pH-responsive bilayer hydrogels composed of polyacid of P(NIPAAm-co-CIPAAm)/PAA semi-IPNs gels and polybase of P(NIPAAm-co-DMAPAAm)/PEI semi-IPNs gels have been demonstrated via UV exposure. Local UV irradiation on a limited region can potentially be used to control the bending degree of bilayer gels. Moreover, the 3D example of flower-like bilayer hydrogel which reversibly blossoming/withering upon UV illumination was also successfully fabricated. This unique smart bilayer hydrogels can be applied as potential muscle-like actuators, controlled encapsulation and release, robotics and microfluidic technologies.

In **chapter 4** describes the development of a novel packing material composed of self-heating, temperature-responsive magnetite/silica particles. The modified particles were used as a stationary phase in temperature-responsive chromatography system. Because magnetic particles generate heat when subjected to AMF, the hydrophilic to hydrophobic phase separation of the grafted polymer was successfully controlled by 'on-off' switching of the AMF. The retention times for hydrophobic steroids dramatically increased when subjected to AMF due to the increase in hydrophobic interaction upon AMF irradiation. By optimizing the LCST of the grafted polymers, the power of AMF, and the compositions of magnetite, this system will offer a more accurate, prompt, and simple 'on-off' control of the

elution profiles for hydrophobic molecules because it does not require heating and cooling of the entire mobile phase.

In conclusions, this thesis designed and developed the novel smart biomaterials which their properties can be indirectly induced by local pH and temperature changes. These systems have highly potential for their wide use toward the future practical applications in the low-infrastructure site utilizing priceless energy such as solar heating or our body heating.

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文では、刺激応答性材料を用いて新しい機能材料への展開に関する研究、すなわちソフトアクチュエータおよび交流磁場を用いた誘導加熱によるクロマトグラフィーに関する研究を遂行している。光酸発生剤を用いることにより、局所的な刺激（pH 変化）の付与を可能にしたアクチュエータを、反対荷電のハイドロゲルを用いたバイジェルによって実現させ、大変シンプルな材料構成にも拘わらず、繰り返し応答する極めて興味深い現象も見出している。また、薬物の放出制御も実現させ、光照射をトリガーとする新しいドラッグデリバリーへの可能性も見出している。

一方、クロマトグラフィーにおいては、誘導加熱が可能なシリカゲル酸化鉄複合微粒子表面に極めて敏感に応答する高分子層を導入して実現させている。交流磁場の ON-OFF でのみモデル分子の溶出を制御しており、大変興味深い。これまで多くの刺激応答性高分子の研究が行われてきたが、本研究は機能材料設計に大変有益な知見を得ており、博士（工学）の学位を与えるに十分な内容を含んでいると判断する。

平成 24 年 2 月 10 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。